

氮肥对茶园土壤氟赋存形态及转化的影响

张永利¹, 廖万有^{1*}, 王焯军^{1,2}, 苏有健¹, 罗毅¹, 宋莉¹, 孙力¹

(1.安徽省农业科学院茶叶研究所, 安徽 祁门 245600; 2.国家茶树育种中心安徽分中心, 安徽 祁门 245600)

摘要:为研究不同水平氮肥对茶园土壤氟赋存形态及转化的影响,以皖南十字铺茶场红黄壤茶园 0~15 cm 土壤为对象,设置 N0P0K0(CK)、N0P1K1(N0)、N1P1K1(N1)、N2P1K1(N2)、N3P1K1(N3) 5 个处理,进行了室内盆钵培养试验,通过分析施肥 10、20、30、50、70、90 d 后土壤水溶态氟、交换态氟、铁锰结合态氟、有机结合态氟含量、铵态氮含量、土壤 pH 值,研究施肥对茶园土壤氟赋存形态及转化的影响。结果表明:与 CK 相比,氮肥与磷钾混施(N1、N2、N3)在短期内(10 d 或 20 d)使土壤水溶态氟含量降低,交换态氟、铁锰结合态氟、有机结合态氟含量增加,20 d 之后土壤水溶态氟增加,交换态氟、铁锰结合态氟、有机结合态氟含量降低,对水溶态氟、交换态氟的影响效果随时间增加而增加,一般施氮量越大影响效果越明显;土壤水溶态氟含量与氮肥施用量成中度正相关,交换态氟与氮肥施用量成中、高度负相关;土壤水溶态氟含量与 pH 值成极显著高度负相关,交换态氟含量与 pH 值成极显著高、中度正相关。因此,氮肥在土壤中的转化过程改变了土壤环境 pH 值,从而影响土壤氟的形态转化和有效性。

关键词:茶园土壤;氮肥;氟;赋存形态;pH 值

中图分类号:S153.3

文献标志码:A

文章编号:2095-6819(2015)05-0436-07

doi: 10.13254/j.jare.2015.0020

Effect of Nitrogen Fertilizer on Combined Forms and Transformation of Fluorine in Tea Garden Soil

ZHANG Yong-li¹, LIAO Wan-you^{1*}, WANG Ye-jun^{1,2}, SU You-jian¹, LUO Yi¹, SONG Li¹, SUN Li¹

(1.Tea Research Institute of the Academy of Sciences & Agriculture of Anhui Province, Qimen 245600, China; 2.Anhui Sub-centre of National Tea Breeding, Qimen 245600, China)

Abstract: In order to investigate the effect of nitrogen fertilizer on combined forms and transformation of fluorine in tea garden soil, soil pot experiment was carried out. The research object was red-yellow soil in Shizipu tea plantation in the south of Anhui Province. Five treatments were N0P0K0 (CK), N0P1K1 (N0), N1P1K1 (N1), N2P1K1 (N2), N3P1K1 (N3). Water-soluble fluorine content, exchangeable fluorine content, Fe/Mn oxide-bound fluorine content, organic matter-bound fluorine content, ammonium nitrogen content and soil pH value in 0~15 cm soil layer were analyzed in 10, 20, 30, 50, 70, 90 days after fertilization. The results showed that compared with CK, in the short term (10 or 20 days) after applying NPK, the content of water-soluble fluorine in 0~15 cm soil layer was decreased and the content of exchangeable fluorine, Fe/Mn oxide-bound fluorine and organic matter-bound fluorine were increased. After 20 days, the content of soil water-soluble fluorine was increased and the content of soil exchangeable fluorine, Fe/Mn oxide-bound fluorine and organic matter-bound fluorine were reduced. The effect on water-soluble fluorine and exchangeable fluorine increased with time and the application rate of nitrogen. The content of water-soluble fluorine in tea garden soil had a moderately positive correlation with the application rate of nitrogen while the content of exchangeable fluorine had a moderately or highly negative correlation with the application rate of nitrogen. The content of water-soluble fluorine had a quite highly negative correlation with the soil pH ($P<0.01$), but the content of exchangeable fluorine had a moderately or highly negative correlation with the soil pH ($P<0.01$). Therefore, nitrogen fertilizer changed the soil pH during its form transformation and thus affected the transformation and the availability of fluorine in soil.

Keywords: tea garden soil; nitrogen fertilizer; fluorine; combined forms; pH value

收稿日期:2015-01-19

基金项目:现代农业产业技术体系建设专项资金项目(CARS-23-01A);安徽省农业科学院院长青年创新基金项目(13B0839)

作者简介:张永利(1986—),女,河南虞城人,助理研究员,主要从事植物营养与土壤质量研究。E-mail: zh042zyl@126.com

*通信作者:廖万有 E-mail: lwanyou@126.com

茶树为典型的聚氟植物,其中叶片中的氟可占茶树全株的 98.1%^[1],且氟含量随着叶龄的增大而升高。边疆少数民族有饮用砖茶、边茶的生活习惯,而砖茶由含氟量较高的粗老原料制成,氟含量超标,能达一般茶叶的 10 倍,“饮茶型氟中毒”问题早已引起关注^[2-4]。目前已有一些降氟措施的研究报道,如培育聚氟能力低的茶树品种、严格控制含氟肥料进入茶园、在土壤或加工中添加降氟剂、选择或改善栽培环境,但是这些降氟措施存在周期时间长,或食品安全、土壤污染问题^[5-7]。而茶树体内氟主要来源于土壤,茶树对土壤中氟的吸收与氟的形态有关^[8],茶叶中氟含量与土壤水溶态氟呈正相关关系^[9-12]。茶园土壤理化性状可以影响土壤氟形态和含量^[13-18],而茶园施肥可对土壤理化性状产生影响,进而影响氟的吸附^[19]和有效性^[20],乃至茶树新梢氟含量^[5,21],是从源头上解决“饮茶型氟中毒”问题的途径之一。但国内外尚未见施肥对茶园土壤氟形态转化方面的研究报道,更无其作用机制的报道。为了深入了解氮素对茶园土壤氟的形态转化的效应,本文在室内盆钵模拟培养条件下,通过对不同施氮水平下茶园土壤氟的赋存形态及土壤理化性质的分析,探索氮肥对氟在茶园土壤中的赋存形态及转化的影响及可能的作用机制,为通过氮肥调控茶园土壤氟的生物有效性提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 试验材料

供试土壤采自安徽郎溪县十字铺茶场的茶园,十字铺茶场位于长江中下游,地处天目山、黄山余脉,地貌为缓坡丘陵,属于亚热带季风气候区。茶园土壤为第四纪红色粘土发育的黄红壤,土体深厚,质地较为粘重。在十字铺茶场选择代表性茶园,采集 0~15 cm 土层土壤,在遮阳通风处晾至土壤润而不潮时,剔除杂物,过 2~3 mm 筛,充分混匀,测得土壤含水量为 12.9%,备用。土壤基础理化性质见表 1。

表 1 供试土壤的主要理化性状
Table 1 Main physicochemical properties of the soil in the experiment

pH 值	水溶态氟/ mg·kg ⁻¹	交换态氟/ mg·kg ⁻¹	铁锰结合态氟/ mg·kg ⁻¹	有机结合态氟/ mg·kg ⁻¹
3.96	5.68	1.24	8.65	1.02

1.2 试验设计

茶园施肥一般为复合肥,为了更好地模拟田间实际情况,本研究设置了不施肥、不施氮肥、氮磷钾配施处理,5 个处理分别为:N0P0K0(CK)、N0P1K1(N0)、N1P1K1(N1)、N2P1K1(N2)、N3P1K1(N3),随机区组,重复 3 次。试供肥料为尿素(N 46%)、过磷酸钙(P₂O₅ 12%)和硫酸钾(K₂O 50%),肥料磨细过筛备用。装盆前测定土壤含水量,按照盆钵土壤容重为 1.2 g·cm⁻³计算每盆所需土壤重量。按照试验处理要求将土壤与肥料混匀,分多次装盆,各处理施肥情况见表 2。称重灌水法保持土壤含水量为 25%。培养 10、20、30、50、70、90 d 后每盆用取土器采集土壤样品,每盆 2 个取样,将土样混匀,以测定茶园土壤 pH 值、土壤无机氮含量和各形态氟含量。

1.3 测定方法

土壤铵态氮采用 1 mol·L⁻¹ NaCl 浸提-靛酚蓝吸光光度法测定。

不同化学形态氟按照文献[22-23]所提供的连续分级浸提方法提取,用氟离子选择电极法测定:水土比 5:1,用蒸馏水在 72 ℃下浸提土壤水溶性氟,用 1 mol·L⁻¹ MgCl₂ 溶液在 25 ℃下浸提土壤交换态氟,用 0.04 mol·L⁻¹ 盐酸羟胺(NH₂OH·HCl)溶液在 60 ℃下浸提土壤铁锰结合态氟,6 mL 0.02 mol·L⁻¹ HNO₃ 和 4.5 mL 30% H₂O₂ 处理后用 3.2 mol·L⁻¹ NH₄OAc 溶液在 25 ℃下浸提土壤有机态氟,当每一级形态浸提完毕后,用称重法测出残留液的体积,并在结果计算时扣除残留液带入的氟量。吸取上述各级上清液 20 mL 于 50 mL 塑料烧杯中,加入总离子强度缓冲剂 20 mL,

表 2 盆钵试验各处理施肥情况

Table 2 The fertilizer application of each treatment in pot experiment

处理	养分施用量/kg·hm ⁻²			养分施用量/mg·kg ⁻¹			实际肥料施用量/g·pot ⁻¹		
	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	尿素(N 46%)	过磷酸钙(P ₂ O ₅ 12%)	硫酸钾(K ₂ O 50%)
CK	0	0	0	0	0	0	0	0	0
N0	0	90	90	0	23.1	23.1	0	1.306	0.314
N1	180	90	90	46.2	23.1	23.1	0.682	1.306	0.314
N2	360	90	90	92.3	23.1	23.1	1.362	1.306	0.314
N3	720	90	90	184.6	23.1	23.1	2.724	1.306	0.314

用氟电极法测定氟含量。

土壤 pH 值采用电位法测定,水土比 2.5:1。

1.4 数据处理

试验数据采用 Excel 2007 软件进行处理及作图,采用 SPSS 19.0 软件进行方差分析及相关性分析,采用 Duncan 多重比较法进行差异显著性检验。

2 结果与分析

2.1 施肥对茶园土壤铵态氮和 pH 值的影响

施肥后茶园土壤铵态氮含量的动态变化如图 1a 所示。由图 1a 可见,与 CK 相比,仅施磷钾肥(N0)对茶园土壤铵态氮的影响甚微;与 CK、N0 相比,施氮处理 10 d 后 0~15 cm 土壤铵态氮含量显著增加,且增加量与施氮量成正比,10~30 d 土壤铵态氮剧烈下降, N1、N2 处理在 35~45 d 后降至对照水平, N3 处理在 40 d 后呈缓慢降低趋势,但仍显著高于其他处理。

施肥后茶园土壤 pH 值的动态变化如图 1b 所示。由图 1b 可见,CK 和 N0 处理土壤 pH 值变化一致,说明磷钾肥对土壤 pH 值影响甚微。与不施氮相比(CK、N0),施氮处理使 0~15 cm 土壤 pH 值在施肥后 10 d 显著增加,施氮量越大,pH 值越高,之后逐渐降低,土壤 pH 值为 $N2 < N3 < N1$ 。

2.2 施肥对茶园土壤各形态氟含量的影响

施肥后茶园 0~15 cm 土壤各形态氟含量的动态变化如图 2 所示。由图 2 可见,与 CK 相比,N0 处理土壤水溶态氟含量在施肥后 0~34 d 显著增加,在 50~90 d 差异不显著;土壤交换态氟含量降低,在 20~54 d 降低效果显著;土壤铁锰结合态氟含量在施肥 0~54 d 降低,在 54 d 以后增加;土壤有机结合态氟含量无显著影响。

N2、N3 处理与 CK 处理相比,以及 N1、N2、N3 处理与 N0 处理相比,在短期内(10 d 或 20 d)使 0~15 cm 土壤水溶态氟含量极显著降低,20 d 之后使土壤水溶态氟含量显著增加,并随时间增加而增加;与 CK、N0 处理相比,N1、N2 处理分别在施肥 10、10~20 d 后使土壤交换态氟含量显著增加,N3 处理在施肥 20 d 后使交换态氟含量显著增加,在施肥 34~93 d 后交换态氟含量降低,34 d 以后降低效果极显著,一般施氮量越大,降低作用越明显。与 CK、N0 处理相比,施氮处理(N1、N2、N3)土壤铁锰结合态氟含量在短期内(10 d 或 10~20 d)极显著增加,在 34 d 以后开始降低,N1、N2 处理在 34~72 d 达到显著水平,N3 处理在 54~93 d 达显著水平;土壤有机结合态氟含量在施肥初期极显著地增加,在 20 d 以后含量降低,尤其是施肥后 20~54 d。

土壤水溶态氟和交换态氟可以被茶树直接吸收利用,为土壤有效氟。与 CK 相比,氮磷钾混施处理在短期内使土壤有效氟含量降低,施氮量越大降低越明显,20~93 d 使土壤有效氟含量逐渐增加,基本上随施氮量的增加和施肥时间的延长而增加,因此在施肥后 27~30 d 之内,N3 处理($N 720 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2} + P_2O_5 90 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2} + K_2O \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$)的土壤有效氟含量最低。

2.3 茶园土壤各形态氟与施肥和土壤性质的相关性分析

茶园施肥后土壤理化性状发生变化,进而会对茶园土壤氟赋存形态产生影响,为研究施肥对茶园土壤各形态氟含量的可能影响机制,本文对茶园土壤各形态氟含量与施肥量、土壤铵态氮含量及土壤 pH 值做了相关性分析,结果如表 3 所示。从表 3 可以看到:土壤水溶态氟与交换态氟高度负相关,有机结合态氟与

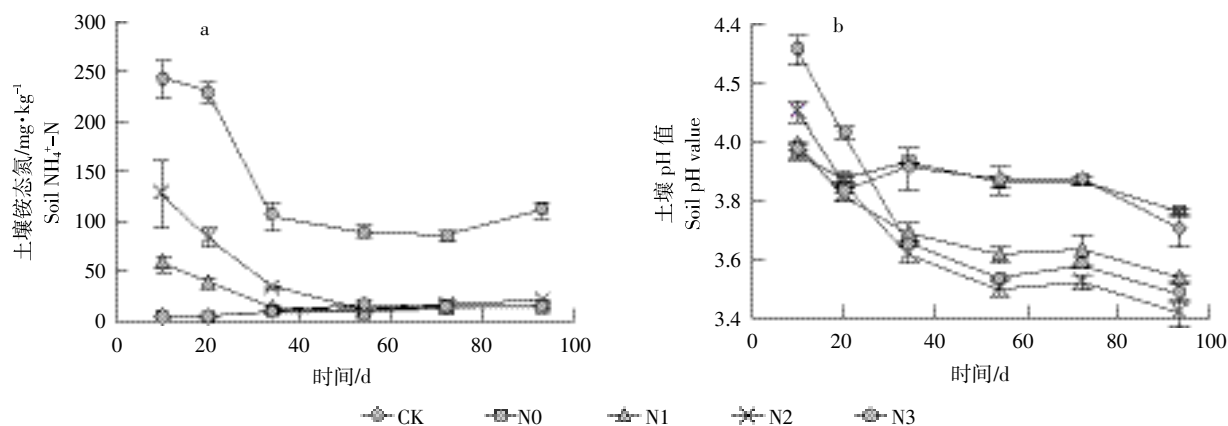


图 1 施肥后茶园土壤铵态氮含量(a)、土壤 pH 值(b)动态变化

Figure 1 Dynamic changes of NH_4^+-N content (a) and soil pH (b) after fertilizer application

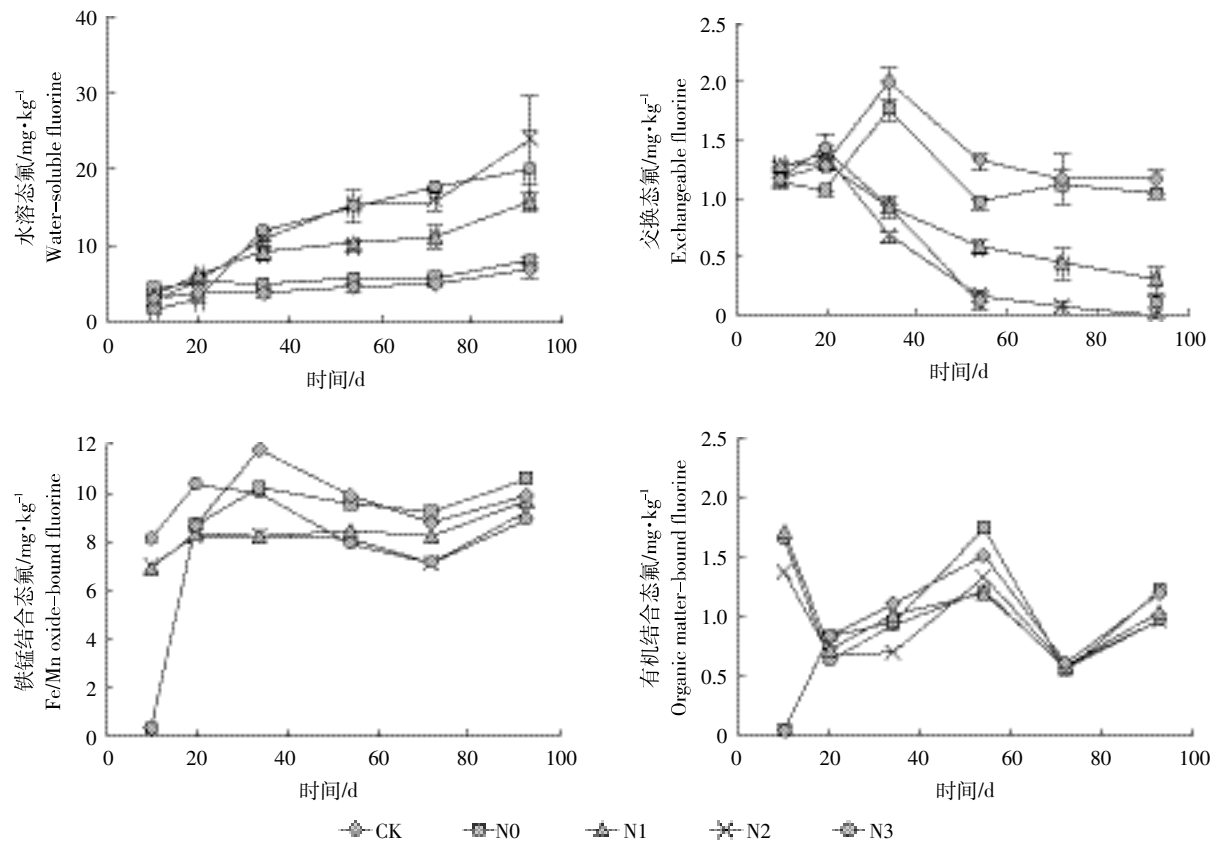


图 2 施肥后茶园土壤各形态氟含量动态变化

Figure 2 Dynamic changes of fluorine content after fertilizer application

表 3 土壤各形态氟与施肥量、NH₄⁺-N、pH 值的 Pearson 相关系数(n=30)

Table 3 The Pearson correlation coefficients among different soil fluorine forms, fertilizer rate, soil NH₄⁺-N and soil pH (n=30)

指标	时间	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	水溶态氟	交换态氟	铁锰结合态氟	有机结合态氟	pH 值
水溶态氟	0.681**	0.449*	0.358	0.358					
交换态氟	-0.590**	-0.478**	-0.413*	-0.413*	-0.901**				
铁锰结合态氟	0.398*	0.074	0.009	0.009	0.124	0.098			
有机结合态氟	0.070	0.078	0.080	0.080	-0.048	0.049	0.518**		
pH 值	-0.700**	-0.211	-0.201	-0.201	-0.909**	0.805**	-0.179	0.104	
NH ₄ ⁺ -N	-0.291	0.791**	0.298	0.298	-0.109	0.035	0.098	0.193	0.379*

注:“**”表示在 0.01 水平(双侧)上显著相关,“*”在 0.05 水平(双侧)上显著相关。

铁锰结合态氟中度正相关,由此可见土壤水溶态氟与交换态氟存在相互转化,有机结合态氟与铁锰结合态氟可能存在相同的影响因素。施氮量与土壤水溶态氟中度正相关,与交换态氟中度负相关,而磷钾施用量与土壤水溶态氟、交换态氟中度负相关,在茶园中合理施用氮磷钾可以降低土壤水溶态氟和交换态氟含量,即降低茶园土壤氟的有效性。土壤 pH 值与土壤水溶态氟高度负相关,与土壤交换态氟高度正相关,说明土壤 pH 值影响着土壤氟的形态转化。

为了进一步分析其原因,本文对土壤各形态氟与

土壤 pH 值分别做了回归分析,结果如图 3 所示,可以看到土壤水溶态氟、土壤交换态氟与土壤 pH 值并非直线关系,而是二次多项式关系,在不同土壤 pH 值范围内,土壤水溶态氟、交换态氟与土壤 pH 值关系不同,这也是不同地区土壤 pH 值与土壤水溶态氟、交换态氟关系不同的原因之一。

3 讨论

不同地区、不同类型土壤氟的化学形态分布存在很大差别^[24-27],因为土壤氟赋存形态除受土壤母质影

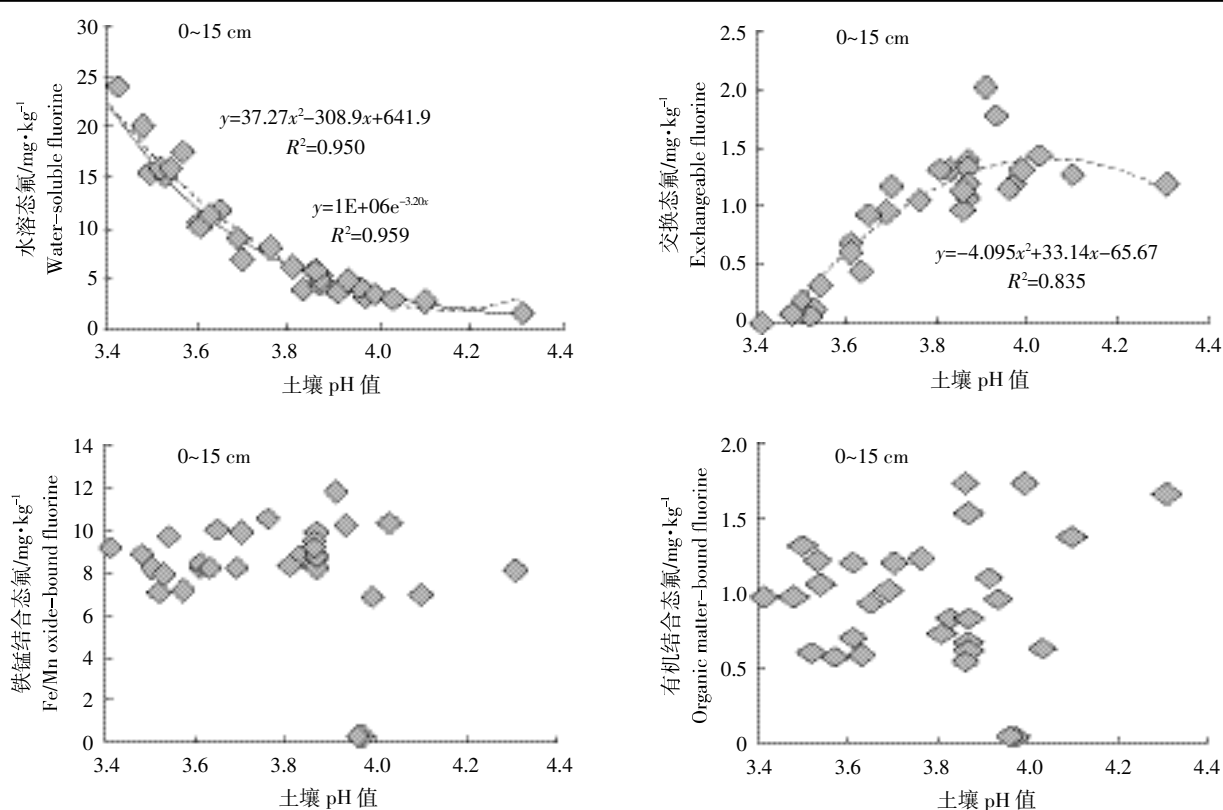


图 3 土壤各形态氟与土壤 pH 值的关系

Figure 3 The relation curves between different soil fluorine forms and soil pH

响外,还与土壤阳离子交换量、土壤有机质、黏粒含量、交换盐基、土壤 pH 值等土壤理化性质有关^[28],研究认为其中土壤 pH 值是最主要的影响因素^[27]。本研究中土壤水溶态氟、土壤交换态氟等与土壤 pH 值呈高度相关,在一定范围内的关系曲线为抛物线,因此土壤水溶态氟、土壤交换态氟等与土壤 pH 值的关系也受当地土壤 pH 值的影响,研究不同地区茶园土壤各形态氟与 pH 值的关系亦不同印证了这一观点^[24-26,29]。

尿素施入土壤后在微生物脲酶的作用下开始水解,转化成碳酸铵,碳酸铵进一步转化为碳酸氢铵和氢氧化铵,由于产生的碳酸铵、碳酸氢铵和氢氧化铵均为碱性物质,使土壤 pH 值急剧升高^[30]。氟有较强的金属络合能力,能够与铝、钙、镁等形成稳定的配位化合物,土壤 pH 值升高时,铝、钙、镁等在土壤溶液中溶解度降低,氟离子和氟络合物减少,使得土壤水溶态氟含量降低;交换态氟是通过静电吸附保持在带正电荷的土壤颗粒表面的氟,当土壤 pH 值升高时,土壤的可变负电荷增加,土壤有机质和土壤表面对氟的吸附结合能力增加,因此交换态氟、铁锰结合态氟、有机结合态氟含量增加。尿素水解转化形成的 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 在

随后的培养过程中不断氧化成硝态氮并释放出 H^+ ^[30],因此,施肥 20 d 后土壤 pH 值持续降低,土壤 pH 值是影响土壤电荷特性、离子交换量、交换性铝、铁、锰、氟的交换吸附、专性吸附等的重要因素,土壤 pH 值降低引起土壤交换态氟、铁锰结合态氟、有机结合态氟转化为水溶态氟,施肥量越大转化作用越明显。当施肥量增加到一定程度时,土壤微生物和酶活性成为限制因素,因此高施氮量处理间各形态氟的差异变小。

在茶树生长季合理施用氮肥,可以改变土壤 pH 值、阳离子交换量等土壤理化形状,进而影响土壤各形态氟的相互转化,降低土壤氟的生物有效性。本文为通过合理施用氮肥降低茶园土壤氟的有效性,减少茶树对土壤氟的吸收,进而降低茶树新梢氟含量提供了理论依据,但是实际运用效果有待田间试验进行验证,施用氮肥对茶树新梢氟含量的具体调控效果也有待进一步研究。

4 结论

(1)氮肥与磷、钾肥合理混施在一定时间范围内可以降低茶园土壤有效氟含量。

(2)土壤 pH 值与土壤水溶态氟高度负相关、与交

换态氟高度正相关;施氮量与土壤水溶态氟中度正相关,与土壤交换态氟高度负相关。

(3)氮肥施入土壤后的转化过程可引起土壤 pH 值的变化,进而导致土壤中各形态氟含量间的相互转化,尤其是水溶态氟、有机结合态氟与交换态氟之间的相互转化。

参考文献:

- [1] 沙济琴,郑达贤. 福建茶树鲜叶含氟量的研究[J]. 茶叶科学, 1994, 14(1): 37-42.
SHA Ji-qin, ZHENG Da-xian. Study on the fluorine in fresh leaves of tea plant planted in Fujian Province[J]. *Journal of Tea Science*, 1994, 14(1): 37-42.(in Chinese)
- [2] Malinowska E, et al. Tea for too much fluoride[J]. *Dental Abstracts*, 2011, 56(1): 12.
- [3] Pehrsson Pamela Ruth, Patterson Kristine Y, Perry Charles R. The fluoride content of select brewed and microwave-brewed black teas in the United States[J]. *Journal of Food Composition and Analysis*, 2011, 24(7): 971-975.
- [4] 孙殿军,刘立志. 我国饮茶型氟中毒研究的回顾及展望[J]. 中国地方病学杂志, 2005, 24(1): 1-2.
SUN Dian-jun, LIU Li-zhi. Drinking-tea-born fluorosis China: Review and prospect[J]. *Chinese Journal of Endemiology*, 2005, 24(1): 1-2.(in Chinese)
- [5] 乔莎. 茶园土壤氟生物有效性及降氟措施研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2011.
QIAO Sha. Studies on bioavailability of fluoride in tea garden soils and its measure of reducing fluoride uptake[D]. Beijing: The Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2011.(in Chinese)
- [6] 孙艳娟,胡文明,唐小林. 低氟砖茶研究的回顾与展望[J]. 中国茶叶加工, 2010(2): 15-17.
SUN Yan-juan, HU Wen-ming, TANG Xiao-lin. Review and prospect for brick tea of low fluoride[J]. *China Tea Processing*, 2010(2): 15-17.(in Chinese)
- [7] 罗学平,李丽霞,何春雷. 茶叶氟研究现状及降氟措施研究进展[J]. 茶叶科学技术, 2006(2): 6-9.
LUO Xue-ping, LI Li-xia, HE Chun-lei. Advanced study on fluoride and measures for reduction of fluoride content in tea (*Camellia sinensis*) [J]. *Tea Science and Technology*, 2006(2): 6-9.(in Chinese)
- [8] 董青华,孙威江,杨贤强. 茶树吸收氟的根际效应及富集机理研究进展[J]. 亚热带农业研究, 2009, 5(3): 162-166.
DONG Qing-hua, SUN Wei-jiang, YANG Xian-qiang. Advances in rhizosphere effects and accumulation mechanism of fluorine intake in *Camellia sinensis* [J]. *Subtropical Agriculture Research*, 2009, 5(3): 162-166.(in Chinese)
- [9] 杨阳. 湖南茶叶氟含量研究[J]. 福建茶叶, 2007(1): 13-14.
YANG Yang. Research on fluorine content in tea from Hunan Province [J]. *Tea in Fujian*, 2007(1): 13-14.(in Chinese)
- [10] 魏世勇. 恩施茶园土壤中氟的赋存特征及其生物有效性[J]. 安徽农业科学, 2007, 35(8): 2328-2329.
WEI Shi-yong. Storage features and bioavailability of fluorine in soils of tea garden[J]. *Journal of Anhui Agricultural Science*, 2007, 35(8): 2328-2329.(in Chinese)
- [11] 谢忠雷,陈卓,孙文田,等. 不同茶园茶叶氟含量及土壤氟的形态分布[J]. 吉林大学学报(地球科学版), 2008, 38(2): 293-298.
XIE Zhong-lei, CHEN Zhuo, SUN Wen-tian, et al. Content of fluoride in tea leaves and distribution of fluoride in soils from different tea gardens[J]. *Journal of Jilin University (Earth Science Edition)*, 2008, 38(2): 293-298.(in Chinese)
- [12] 苏祝成,陆德彪,朱有为,等. 浙江山区茶园茶叶氟含量及影响因素[J]. 林业科学, 2009, 45(12): 135-138.
SU Zhu-cheng, LU De-biao, ZHU You-wei, et al. Fluoride content in tea leaves from mountain tea gardens in Zhejiang Province and the influence factors[J]. *Scientia Silvae Sinicae*, 2009, 45(12): 135-138.(in Chinese)
- [13] 张显晨,郇红建,张正竹,等. 铝对氟在茶树体内吸收与分配的影响[J]. 食品科学, 2013, 34(5): 147-150.
ZHANG Xian-chen, GAO Hong-jian, ZHANG Zheng-zhu, et al. Influence of aluminum on absorption and distribution of fluoride in tea plants (*Camellia sinensis* L.) [J]. *Food Science*, 2013, 34(5): 147-150.(in Chinese)
- [14] 刘腾腾,赵强,郇红建,等. 有机酸与根表铁膜对茶树吸收和富集氟的影响[J]. 南京农业大学学报, 2013, 36(1): 72-78.
LIU Teng-teng, ZHAO Qiang, GAO Hong-jian, et al. Effects of organic acids and iron plaque outside roots on absorption and accumulation of fluoride in tea plants[J]. *Journal of Nanjing Agricultural University*, 2013, 36(1): 72-78.(in Chinese)
- [15] 郇红建,金友前,董艳红,等. 水溶性有机质对茶园土壤氟形态的影响[J]. 安徽农业大学学报, 2012, 39(3): 389-393.
GAO Hong-jian, JIN You-qian, DONG Yan-hong, et al. Influences of dissolved organic matter on fluoride fractions in soils[J]. *Journal of Anhui Agricultural University*, 2012, 39(3): 389-393.(in Chinese)
- [16] 郇红建,刘腾腾,张显晨,等. 安徽茶园土壤氟在茶树体内的富集与转运特征[J]. 环境化学, 2011, 30(8): 1462-1467.
GAO Hong-jian, LIU Teng-teng, ZHANG Xian-chen, et al. Bioaccumulation and translocation of fluoride from soils to different parts of tea plants in Anhui Province[J]. *Environmental Chemistry*, 2011, 30(8): 1462-1467.(in Chinese)
- [17] 王凌霞,胡红青,闵艳林,等. 茶园土壤水溶性氟含量的模拟调控[J]. 环境科学学报, 2011, 31(7): 1517-1525.
WANG Ling-xia, HU Hong-qing, MIN Yan-lin, et al. Simulated control of water-soluble fluoride content in tea garden soils[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2011, 31(7): 1517-1525.(in Chinese)
- [18] 李洋洋. 铝-氟互作对水稻及土壤中氟含量的影响研究[D]. 长春: 吉林农业大学, 2011.
LI Yang-yang. Research on the influence of Al-F interaction on F in rice plant and soil[D]. Changchun: Jilin Agricultural University, 2011.(in Chinese)
- [19] 崔俊学. 广东某地潮土和水稻土中氟形态转化及吸附研究[D]. 成都: 成都理工大学, 2010.

- CUI Jun-xue. Study on species transformation and adsorption of fluorine in fluoro aquic soil and paddy soil of the Guangdong[D]. Chengdu: Chengdu University of Technology, 2010.(in Chinese)
- [20] 王烨军, 廖万有, 张永利, 等. 不同施氮水平对茶鲜叶中氟的调控效应研究[J]. 中国农学通报, 2014, 30(31): 108-113.
WANG Ye-jun, LIAO Wan-you, ZHANG Yong-li, et al. Regulation effect of different nitrogen levels on the content of fluoride in fresh tea leaves[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2014, 30(31): 108-113.(in Chinese)
- [21] 李丽霞. 茶树吸收富集氟的特性及初步调控研究[D]. 雅安: 四川农业大学, 2008.
LI Li-xia. Study on absorption and preliminary control characteristics of enrichment of fluorine of tea[D]. Ya'an: Sichuan Agricultural University, 2008.(in Chinese)
- [22] Tessier A, Campbell P G C, Bisson M. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals[J]. *Analytical Chemistry*, 1979, 51(7): 344-351.
- [23] 何振立, 周启星, 谢正苗. 污染及有益元素的土壤化学平衡[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1998: 315.
HE Zhen-li, ZHOU Qi-xing, XIE Zheng-miao. Soil chemical equilibrium of polluted and useful elements[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1998: 315.(in Chinese)
- [24] 秦樊鑫, 吴迪, 黄先飞, 等. 高氟病区茶园土壤氟形态及其分布特征[J]. 中国环境科学, 2014, 34(11): 2859-2865.
QIN Fan-xin, WU Di, HUANG Xian-fei, et al. Distribution characteristics and speciation of fluorine in tea garden soils in the high fluoride area[J]. *China Environmental Science*, 2014, 34(11): 2859-2865.(in Chinese)
- [25] 李亮, 吴亚, 王焰新, 等. 大同盆地地方氟病区地区土壤中氟的赋存形态研究[J]. 安全与环境工程, 2014, 21(5): 52-57.
LI Liang, WU Ya, WANG Yan-xin, et al. Fluorine speciation in sediments from endemic fluorosis-impacted areas in Datong Basin[J]. *Safety and Environmental Engineering*, 2014, 21(5): 52-57.(in Chinese)
- [26] 易春瑶, 汪丙国, 靳孟贵. 华北平原典型区土壤氟的形态及其分布特征[J]. 环境科学, 2013, 34(8): 3195-3204.
YI Chun-yao, WANG Bing-guo, JIN Meng-gui. Fluorine speciation and its distribution characteristics in selected agricultural soils of North China Plain[J]. *Environmental Science*, 2013, 34(8): 3195-3204.(in Chinese)
- [27] 吴卫红, 谢正苗, 徐建明, 等. 不同土壤中氟附存形态及其影响因素[J]. 环境科学, 2002, 23(2): 104-108.
WU Wei-hong, XIE Zheng-miao, XU Jian-ming, et al. Characteristics of forms of fluorine in soils and influential factors[J]. *Environmental Science*, 2002, 23(2): 104-108.(in Chinese)
- [28] 易春瑶, 汪丙国, 靳孟贵. 水-土-植物系统中氟迁移转化规律的研究进展[J]. 安全与环境工程, 2013, 20(6): 59-64.
YI Chun-yao, WANG Bing-guo, JIN Meng-gui. Research progress of migration and transformation laws of fluoride in groundwater-soil-plant system[J]. *Safety and Environmental Engineering*, 2013, 20(6): 59-64.(in Chinese)
- [29] 于群英, 李孝良, 汪建飞, 等. 安徽省土壤氟含量及其赋存特征[J]. 长江流域资源与环境, 2013, 22(7): 915-921.
YU Qun-ying, LI Xiao-liang, WANG Jian-fei, et al. Content of fluorine and characteristics of fluorine forms in soils of Anhui Province[J]. *Resources and Environment in the Yangtze Basin*, 2013, 22(7): 915-921.(in Chinese)
- [30] 赵晶, 冯文强, 秦鱼生, 等. 不同氮磷钾肥对土壤 pH 和镉有效性的影响[J]. 土壤学报, 2010, 47(5): 953-961.
ZHAO Jing, FENG Wen-qiang, QIN Yu-sheng, et al. Effects of application of nitrogen, phosphorus and potassium fertilizers on soil pH and cadmium availability[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2010, 47(5): 953-961.(in Chinese)